

Abstract of Japanese Patent Publication

Patent Publication No. 7-109342

Publication date: April 25, 1995

Request for Examination: No request

Patent Application No. 6-248286

Application date: September 19, 1994

Convention Priority(ies):

Priority No.: P4332169.0

Priority date: September 22, 1993

Priority state: Germany (DE)

Priority No.: P4416325.8

Priority date: May 9, 1994

Priority state: Germany (DE)

Inventor(s) : Birfleet Heze, et al

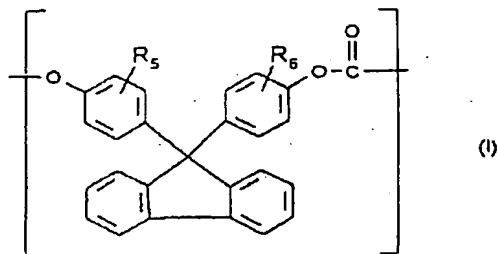
Applicant: Bayer Aktiengesellschaft

Title of the invention: Method for using particular polycarbonate for  
production of optical product

(Names of individuals and corporation have been translated phonetically)

**【 Constitution 】**

A polycarbonate comprising 20 to 90 mol% of bifunctional carbonate structural unit represented by the formula ( I ) to total mol of bifunctional carbonate structural units in the polycarbonate is provided;



wherein R<sub>5</sub> and R<sub>6</sub>, each different or the same, are H or an alkyl of C<sub>1</sub> to C<sub>11</sub>.

**【Effect】**

The polycarbonate is applied to optical products with very low birefringence, e.g., lens and compact disc because it comprises the structural unit represented by formula ( I ).

(19)日本国特許庁 (J P)

## (12)公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平 7 - 1 0 9 3 4 2

(43)公開日 平成 7 年 (1 9 9 5) 4 月 2 5 日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C08G 64/14	NPT			
64/24	NPV			
64/30	NPU			
G02B 1/04		7724-2K		

審査請求 未請求 請求項の数 7 F D (全 1 0 頁)

(21)出願番号	特願平 6 - 2 4 8 2 8 6	(71)出願人	3 9 0 0 2 3 6 0 7 バイエル・アクチエンゲゼルシャフト BAYER AKTIENGESELLS CHAFT ドイツ連邦共和国デー 5 1 3 6 8 レーフ エルクーゼン (番地なし)
(22)出願日	平成 6 年 (1 9 9 4) 9 月 1 9 日	(72)発明者	ビルフリート・ヘーゼ ドイツ 5 1 5 1 9 オーデンタール・オゼナ ウアーシュトラッセ 3 2
(31)優先権主張番号	P 4 3 3 2 1 6 9 . 0	(72)発明者	フリードリヒ・ブルダー ドイツ 4 7 8 0 0 クレーフェルト・ボーデ ルシュピングシュトラッセ 2 0
(32)優先日	1 9 9 3 年 9 月 2 2 日	(74)代理人	弁理士 小田島 平吉
(33)優先権主張国	ドイツ (D E)		
(31)優先権主張番号	P 4 4 1 6 3 2 5 . 8		
(32)優先日	1 9 9 4 年 5 月 9 日		
(33)優先権主張国	ドイツ (D E)		

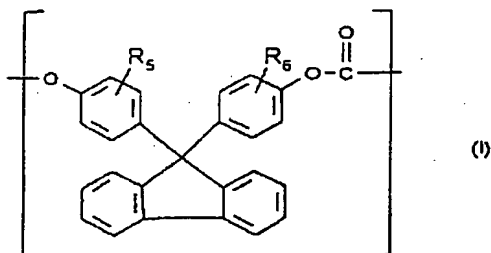
最終頁に続く

(54)【発明の名称】光学製品の製造に対する特殊なポリカーボネートの使用法

(57)【要約】

【構成】 ポリカーボネート中の 2 官能性カーボネート構造単位の全モル量に対して式 (I)

【化 1】



【式中、R<sub>5</sub> 及び R<sub>6</sub> は同一でも異なってもよく且つ H 又は C<sub>1</sub> ~ C<sub>11</sub> アルキルである】の 2 官能性カーボネート構造単位を 2 0 ~ 9 0 モル%の量で含有するポリカーボネートが提供される。

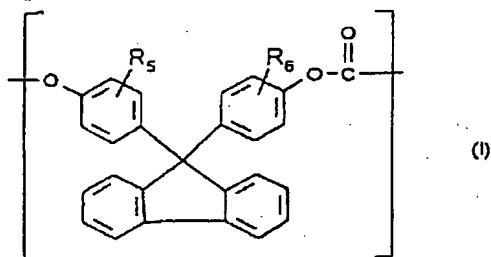
【効果】 ポリカーボネートは、式 (I) の構造単位を含むことによって特に非常に複屈折率の低い光学製品、例えばレンズ、コンパクトディスクなどへ利用される。

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 光学製品の製造に際して、ポリカーボネート中の2官能性カーボネート構造単位的全モル量に対して式(I)

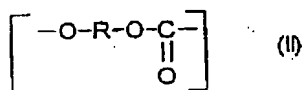
## 【化1】



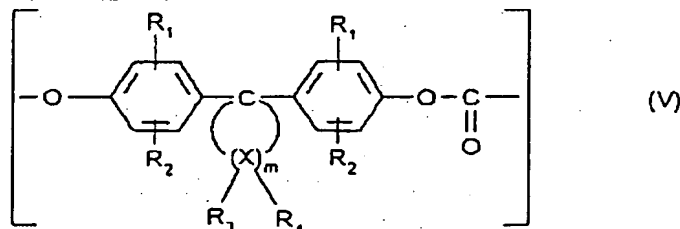
【式中、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>は同一でも異なってもよく且つH又はC<sub>1</sub>~C<sub>11</sub>アルキルである】の2官能性カーボネート構造単位を20~90モル%の量で含有するポリカーボネートを使用する方法。

【請求項2】 ポリカーボネートが式(II)

## 【化2】



【式中、-O-R-O-はいずれか他の所望のジフェノ



【式中、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は同一でも異なってもよく且つCH<sub>3</sub>、Cl、Br、又はHであり、mは4又は5であり、そしてR<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は各Xに対して独立に且つ相互にも独立にH又はCH<sub>3</sub>であり、またXは炭素原子である】の構造単位を、他のカーボネート構造単位として含有する請求項2の使用法。

【請求項5】 請求項1の式(I)の2官能性カーボネート構造単位を、ポリカーボネート中の2官能性カーボ

100モル%である、 $\overline{M}_w$  (予じめ補正後のゲルクロマトグラフィーによって測定した重量平均分子量) が少くとも9000の熱可塑性芳香族ポリカーボネート。

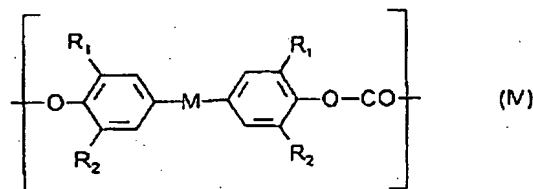
【請求項6】 下記ジフェノール(Ia)及び(Va)の100モル%に基づいて、20~90モル%の量のジフェノール(Ia)

## 【化5】

レート残基であり、但し-R-は炭素数6~30の芳香族残基であって、1つ又はそれ以上の芳香族環を含有してよく、置換されていてよく、且つ脂肪族残基、脂環族残基又はヘテロ原子を架橋員として含有していてもよい】の他の2官能性カーボネート構造単位を80~10モル%の補完的な量で含有する請求項1の使用法。

【請求項3】 ポリカーボネートが式(IV)

## 【化3】



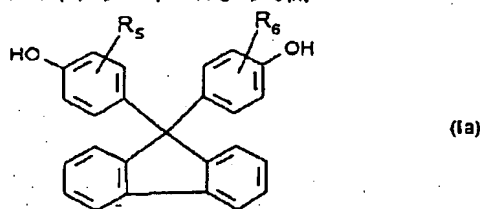
【式中、MはC<sub>1</sub>~C<sub>8</sub>アルキレン、C<sub>1</sub>~C<sub>8</sub>アルキリデン、C<sub>1</sub>~C<sub>11</sub>シクロアルキリデン、-S-及び単結合であり、またR<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は同一でも異なってもよく且つCH<sub>3</sub>、Cl、Br又はHである】の構造単位を、他のカーボネート構造単位として含有する請求項2の使用法。

【請求項4】 ポリカーボネートが式(V)

## 【化4】

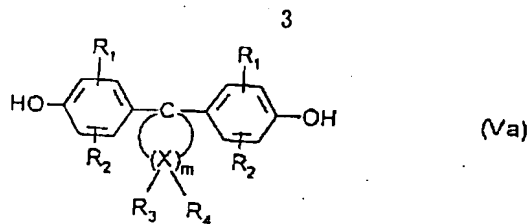
ネート構造単位全モル量に対して20~90モル%の量で、及び請求項4の式(V)の2官能性カーボネート構造単位を、ポリカーボネート中の2官能性カーボネート構造単位全モル量に対して80~10モル%の量で、含有する、但し構造単位(I)及び(V)の合計が各場合に

## 【外1】



【式中、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>は同一でも異なってもよく且つH又はC<sub>1</sub>~C<sub>11</sub>アルキルである】を、80~10モル%の量のジフェノール(Va)

## 【化6】

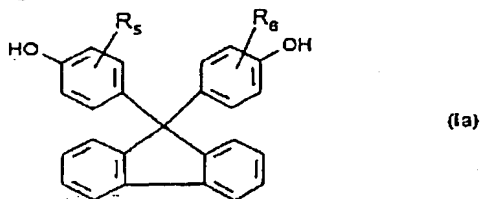


〔式中、 $R_1$  及び  $R_2$  は同一でも異なってもよく且つ  $C$ 、 $H$ 、 $Cl$ 、 $Br$ 、又は  $H$  であり、 $m$  は 4 又は 5 であり、そして  $R_3$  及び  $R_4$  は各  $X$  に対して独立に且つ相互にも独立に  $H$  又は  $CH_3$  であり、また  $X$  は炭素原子であ

る〕と一緒に、公知の方法に従い、連鎖停止剤及び随時分岐剤の存在下に、ホスゲンと又はジフェニルカーボネ

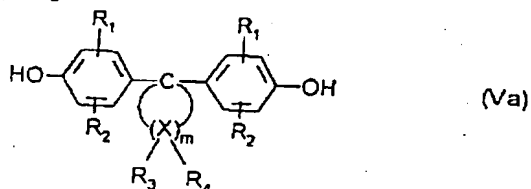
が請求項 2 の一般式 (I I) の他の構造単位で代替されていてもよい  $\bar{M}_w$  (予じめ補正後のゲルクロマトグラフィーによって測定した重量平均分子量) が少くとも 9000 のポリカーボネートを製造するに際して、下記ジフェノール (I a) 及び (Va) の 100 モル% に基づいて、20~90 モル% の量のジフェノール (I a)

【化 7】



〔式中、 $R_5$  及び  $R_6$  は同一でも異なってもよく且つ  $H$  又は  $C_1 \sim C_{11}$  アルキルである〕を、80~10 モル% の量のジフェノール (Va)

【化 8】



〔式中、 $R_1$  及び  $R_2$  は同一でも異なってもよく且つ  $C$ 、 $H$ 、 $Cl$ 、 $Br$ 、又は  $H$  であり、 $m$  は 4 又は 5 であり、そして  $R_3$  及び  $R_4$  は各  $X$  に対して独立に且つ相互にも独立に  $H$  又は  $CH_3$  であり、また  $X$  は炭素原子である〕と一緒に、公知の方法に従い、連鎖停止剤及び随時分岐剤の存在下に、ホスゲンと又はジフェニルカーボネートと反応させる、但しジフェノール (Va) の特定のモル% の 2/3 までが一般構造式 (I I a)

$HO-R-OH$

〔式中、 $-R-$  は炭素数 6~30 の芳香族残基である〕の他のジフェノールで代替されていてもよい、該ポリカーボネートの製造法。

【発明の詳細な説明】

【0001】本発明は、特殊なポリカーボネートが、そのポリカーボネート中の 2 官能性カーボネート構造単位

と反応させる請求項 5 のポリカーボネートの製造法。

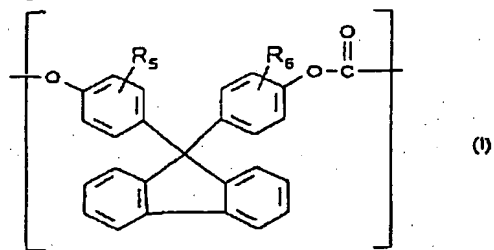
【請求項 7】 請求項 1 の式 (I) の 2 官能性カーボネート構造単位を、ポリカーボネート中の 2 官能性カーボネート構造単位の全モル量に対して 20~90 モル% の量で、及び請求項 4 の式 (V) の 2 官能性カーボネート構造単位を、ポリカーボネート中の 2 官能性カーボネート構造単位の全モル量に対して 80~10 モル% の量で、含有する、但し構造単位 (V) の特定のモル% の 2/3 まで

【外 2】

の全モル量に対して式 (I)

【0002】

【化 9】

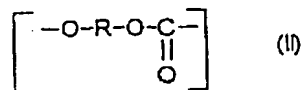


【0003】〔式中、 $R_5$  及び  $R_6$  は同一でも異なってもよく且つ  $H$  又は  $C_1 \sim C_{11}$  アルキル、例えば  $CH_3$ 、好ましくは  $R_5 = R_6 = H$  である〕の 2 官能性カーボネート構造単位を 20~90 モル%、好ましくは 50~80 モル% の量で含有する光学薬品の製造に対する該特殊なポリカーボネートの使用法を提供する。

【0004】80~10 モル%、好ましくは 50~20 モル% の補完量は式 (I I)

【0005】

【化 10】



【0006】〔式中、 $-O-R-O-$  はいずれか他の所望のジフェノレート残基であり、但し  $-R-$  は炭素数 6~30 の芳香族残基であって、1 つ又はそれ以上の芳香族環を含有していてもよく、置換されていてよく、且つ脂肪族残基、脂環族残基又はヘテロ原子を架橋員として含有していてもよい〕の他の 2 官能性カーボネート構造単位を含んでなる。

【0007】本発明によるポリカーボネートは、公知のように単離されたポリカーボネートをベレットに押し出し、そして随時添加剤の混入後にこれらのベレットを射出成形で加工することによって光学製品にすることができる。

【0008】9,9-ビス-(4-ヒドロキシフェニ

ル) -フルオレンから製造されるポリカーボネートは公知である[参照、例えばP. W. モーガン、マクロモレキュールズ (Macromolecules)、3、536~544 (1970)、又はR. P. カンブア (Kambour) ら、ジャーナル・オブ・アプライド・ポリマー・サイエンス (Journal of Applied Polymer Science)、30、3275~3292 (1976) 及びR. P. カンブア、J. ポリム・サイ (Polym. Sci.)、ポリマー・レターズ・エディション (Polymer Letters Edition)、16、327~333 (1978)]。

【0009】本申請者の見解では、光学製品の製造に対するそのようなポリカーボネートの使用は、文献において推奨されてもいないし、明らかにもされていない。

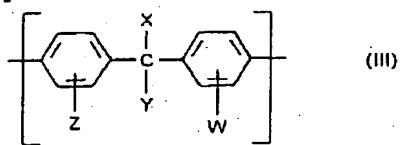
【0010】本発明に従う光学製品は、特に非常に低い複屈折率を有する又はそれを必要とするもの、例えばレンズ、プリズム、光学データ貯蔵媒体、コンパクト・ディスクであるが、特に光学的情報を貯蔵するための、繰返し読みとり且つ書き込みが可能な光学データ貯蔵媒体である。

【0011】低複屈折率を有するポリカーボネートは例えばG. カンプ (Kaempf) ら、ポリマー・プレプリント (Polymer Preprints)、29、209及び210 (1988) から公知である。しかしながらこの刊行物は本発明の主題に対する参考文献を含んでいない。

【0012】ヨーロッパ特許第177713号は、特別なポリカーボネート及びその光学ディスクとしての使用を記述している。このポリカーボネートは式 (III) 30

【0013】

【化11】

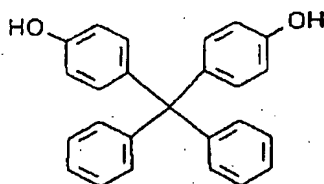


【0014】[式中、残基X及びYの少くとも1つは炭素数6~12のアリール又はアラルキルである]の構造単位を含む。

【0015】ビス-(4-ヒドロキシフェニル) ジフェニルメタン

【0016】

【化12】



【0017】は (III) の製造に対して例示されている (ヨーロッパ特許第177713号、5頁、22行)。

ヨーロッパ特許第177713号によるポリカーボネートは、光学的目的に適合である一連の良好な性質を有する (9頁、19行以降)。式 (I) の2官能性単位を含む本発明で使用するポリカーボネートと比べて、その複屈折率は依然高すぎる。例えばビス-(4-ヒドロキシフェニル) ジフェニルメタンから製造されるポリカーボネートの複屈折率は依然としてビスフェノールAポリカーボネートのその約15%である [応用物理学誌、29 (5)、898~901 (1990)]。

【0018】ヨーロッパ特許第287887号は、6,6'-ジヒドロキシ-3,3,3',3'-テトラメチル-1,1'-スピロ (ビス) インダネンに基づくポリカーボネートを記述している。この化合物から非常に低い光学複屈折率の材料を製造することが意図されているけれど、それはスピロビスインダネンビスフェノール含量が非常に高い場合だけ可能である (参照、該ヨーロッパ特許の表 (III)、更に対照実施例)。しかしながらこれはこのポリカーボネートを非常に脆くし、加工を困難にする。

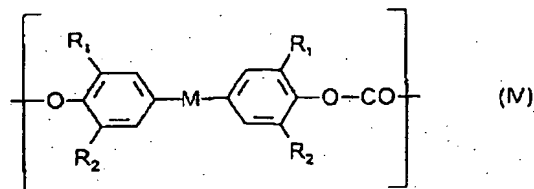
【0019】中でもビス-(4-ヒドロキシフェニル) ジフェニルメタンは、付加的ジフェノールとしても使用されている (3頁、48行)。

【0020】斯くして本発明の目的は、容易に光学製品に加工でき、且つ更に低複屈折率と良好な機械的性質を有する光学製品を与える、光学製品製造のための特別なポリカーボネートを提供することであった。

【0021】これは特に式 (IV)

【0022】

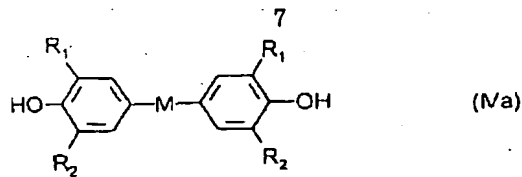
【化13】



【0023】[式中、MはC1~C4アルキレン、C1~C4アルキリデン、C1~C10シクロアルキリデン、-S-及び単結合であり、またR1及びR2は同一でも異なってもよく且つCH3、Cl、Br又はHである]の構造単位が式 (III) の構造単位としての補完的な量で存在する場合である。構造単位 (IV) に基づくジフェノール (IVa)

【0024】

【化14】



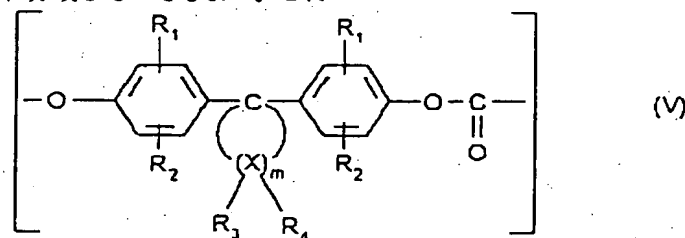
【0025】〔式中、M、R<sub>1</sub> 及びR<sub>2</sub> は (IV) に対して言及した意味を有する〕の例は、4, 4'-ジヒドロキシジフェニル、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 4-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、2, 2-ビス(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3-クロル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、ビス(3, 3-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)メタン、2, 2-ビス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 4-ビス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、2, 2-ビス(3, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3, 5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン及び1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサンである。

0の平均分子量 $\bar{M}_w$  (予じめの補正後にゲルクロマトグラフィーで決定、重量平

【0030】均)を有する。またそれらは150℃以上のガラス転移温度を有する。

【0031】式(I)の構造単位を有する本発明で使用するポリカーボネートは、分子鎖端に通常のフェニル又はアルキルフェニル末端基を有する。この基はポリカーボネートの合成中、フェノール又はアルキルフェノールを連鎖停止剤として用いる公知の方法で導入される。

【0032】式(I)の構造単位を有する本発明で使用するポリカーボネートは、分岐していてもよい。これ



【0035】〔式中、R<sub>1</sub> 及びR<sub>2</sub> は式(IV)に対して言及した意味を有し、mは4又は5であり、そしてR<sub>3</sub> 及びR<sub>4</sub> は各Xに対して独立に且つ相互にも独立にH又はCH<sub>3</sub>であり、またXは炭素原子である〕の構造単位を補完構造単位(II)として含有するものは新規である。

【0036】これらのポリカーボネートは、公知の方法に従い、例えば米国特許第4, 982, 014号及び独

【0026】好適なジフェノール(IVa)は2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3, 5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン及び1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサンである。

【0027】ジフェノール(IIa)



〔式中、一般にRは式(II)に対して言及した意味を有する〕及び特別なジフェノール(IVa)の両方は、式(I)の構造単位を有する本発明で使用するポリカーボネートの製造に対してそれぞれ又は組合せて使用することができる。

【0028】式(I)の構造単位を有する本発明で使用するポリカーボネートは、少くとも9000、特に9500~120,000、好ましくは10000~60000

【0029】

【外3】

は公知の方法により3官能性又はそれ以上の化合物を混入することによって行われる。本ポリカーボネートは更に通常の混入される添加剤例えば離型剤、UV安定剤及び熱安定剤を含有していてもよい。

【0033】式(I)の構造単位を有する本発明で使用するポリカーボネートのいくつか、即ち式(V)

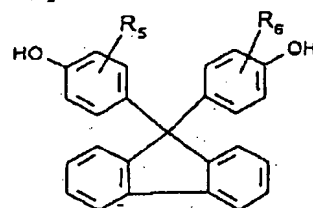
【0034】

【化15】

0:20にして、ジフェノール(IIa)

【0037】

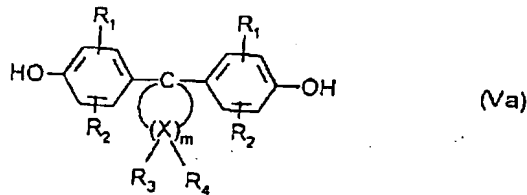
【化16】



【0038】〔式中、R<sub>3</sub> 及びR<sub>4</sub> は式(I)に対して言及した意味を有する〕及びジフェノール(IVa)

【0039】

【化17】



【0040】【式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $X$ 及び $m$ は式(V)に対して言及した意味を有する】から製造される。

造単位(I)及び(V)の合計が各場合に100モル%である、 $\bar{M}_w$ (予じめ補

【0043】正後のゲルクロマトグラフィーによって測定した重量平均分子量)が少くとも9000、特に9500~120000、好ましくは10000~60000の熱可塑性の芳香族ポリカーボネートも提供する。

【0044】通常のアリーレン末端基を含有し且つ分岐していてもよいこれら新規なポリカーボネートは、更に通常の添加剤例えば離型剤、UV安定剤、熱安定剤又は難燃剤を、事実熱可塑性ポリカーボネートに対して通常20の量で含有していてもよい。斯くして本発明は、それぞれジフェノール(Ia)及び(Va)の合計100モル%に基づいて、20~90モル%、好ましくは50~80モル%の量でジフェノール(Ia)を、80~10モル%、好ましくは50~20モル%の量のジフェノール(Va)と一緒に、公知の方法に従い、連鎖停止剤及び随時分岐鎖剤の存在下に、ホスゲンと又はジフェニルカーボネートと反応させる、式(I)及び(V)の2官能性構造単位からのポリカーボネートの製造法も提供する。

【0045】しかしながら特別なジフェノール(Va)の一部分は、通常の構造(IIa)の他のジフェノール、好ましくはすでに前述したもの、即ち4,4'-ジヒドロキシジフェニル、2,2'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、2,4'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、2,2'-ビス-(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2'-ビス-(3-クロル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、ビス-(3,3-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)メタン、2,2'-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,4'-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、2,2'-ビス-(3,5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2'-ビス-(3,5-ジブロモ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、1,1'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン及び1,1'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサンで代替されていてもよい。

【0046】通常の構造式(IIa)の他のジフェノール 50

【0041】斯くして本発明は、式(I)の2官能性カーボネート構造単位を、ポリカーボネート中の2官能性カーボネート構造単位の全モル量に対して20~90モル%、好ましくは50~80モル%の量で、及び式

(V)の2官能性カーボネート構造単位を、ポリカーボネート中の2官能性カーボネート構造単位の全モル量に対して80~10モル%、好ましくは50~20モル%の量で、含有する、但し構

【0042】

【外4】

ルの割合は、用いるジフェノール(Va)の特別なモル%の2/3まで、好ましくは1/2まで、特に1/3までの量であるべきである。

【0047】斯くして本発明は、構造単位(V)の2/3まで、好ましくは1/2まで、特に1/3までが一般式(II)の他の構造単位で代替されていてよい式

(I)及び(V)の2官能性構造単位からのポリカーボネートの製造に際して、それぞれジフェノール(Ia)及び(Va)の100モル%に基づいて、20~90モル%、好ましくは50~80モル%の量のジフェノール(Ia)を、80~10モル%、好ましくは50~20モル%の量のジフェノール(Va)と一緒に、公知の方法に従い、連鎖停止剤及び随時分岐剤の存在下に、ホスゲンと又はジフェニルカーボネートと反応させる、但しジフェノール(Va)のモル%の2/3まで、好ましくは1/2まで、特に1/3までが一般構造式(IIa)の他のジフェノールで代替されていてもよい、該ポリカーボネートの製造法も提供する。

【0048】これらの場合、勿論ジフェノール(Va)と他のジフェノール(IIa)の全モル量は80~10モル%、好ましくは50~20モル%である。

【0049】更に本発明は上記方法に従って製造しうるコポリカーボネートを提供する。

【0050】本新規なポリカーボネートは、公知の方法で単離でき、そして公知の装置により種々の成形物に、特に最初に言及した光学製品に、即ちレンズ、プリズム、光学データ貯蔵媒体などに加工することができる。

【0051】本新規なポリカーボネートは当然フィルムにキャストでき或いは二重壁シートに押出すこともでき、これらは電気工学及び構造体に使用される。

【0052】

【実施例】

実施例1~7

次のコポリカーボネートを製造し、そのレオ光学(leo optical)定数を測定した。

【0053】

【表1】



11  
表 1

実施例	フルオレノン ビス フェノール (g)	ビス フェノール A (g)	モル比 (モル/モル)	塩化 メチレン (g)	水 (g)
1	21.9	42.8	25:75	1352	1352
2	43.8	28.5	50:50	1498	1498
3	61.32	17.1	70:30	1614	1614
4	65.7	14.3	75:25	1643	1643

【0054】

## コポリカーボネートの製造

9, 9-ビス- (4-ヒドロキシフェニル) フルオレン

(フルオレノンビスフェノール) (表1から)

a g

ビスフェノール (表1から)

(ビスフェノールAの合計0.25モル)

b g

水酸化カリウム

112.2 g

水 (表1から)

c g

を一緒に攪拌し、不活性な気体下に溶解した。次いで塩化メチレン (表1から) d g を添加した。pH 11~14 及び 20~25℃において、ホスゲン 61.8 g を、約 2 g/分の速度で完全攪拌溶液中に導入した。次いでイソオクチルフェノール 1.16 g 及び N-エチルピペリジン 0.425 g を添加し、この混合物を更に 45 分間攪拌した。ビスフェノレートを含む溶液を分離し、有機相を酸性にし、次いで中性になるまで水洗

し、溶媒を除去した。

【0055】得られたポリカーボネートは 1.2~1.3 の範囲の相対溶液粘度を有した。

## 対照実施例

6, 6'-ジヒドロキシ-3, 3, 3', 3'-テトラメチル-1, 1'-スピロ (ビス) インダン (スピロビスインダン) に基づく次の共重合体を合成し、その性質を測定した：

## 対照実施例

モル比 (スピロビスインダン/ビスフェノールA)

5

50:50

6

75:25

7

90:10

6, 6'-ジヒドロキシ-3, 3, 3', 3'-テトラメチル-1, 1'-スピロ (ビス) インダン及び対応する重合体の合成は例えばヨーロッパ特許第 287887 号に記述されている。

## 【0056】複屈折率の決定

レオ光学定数 C を決定するために、単軸引張り応力  $\Delta\sigma$  を熱溶融テープに適用することによって重合体を配向させた。

【0057】試験片を作るために、適当なスロット口金を有する加熱されたプランジャー注入器を使用した。可能ならば、溶融温度を最初に粘度が  $7 \times 10^4 \sim 1.5 \times 10^4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$  となるように調節した。巻取りモータを用いてテープを上方へ取り出し、スロット口金上の熱域におけるテープの延伸を制御した。テープの延伸にはある一定の引張り力 F を使用した。

【0058】引張り力 F の作用下に生ずる単軸の、圧縮できない延伸流のために、口金からの距離が増大するにつれて、テープの断面積は減少した。しかしながら、溶

融物は同時に非常に速く冷却し、完全な配向過程は遅くともガラス転位温度で終り、その配向が凍結された。異なる大きさの取出し力を適用して、種々の配向度を作ることができた。

【0059】一端テープが冷却すると、断面積 A を決定することができる。引張り力 F との関連において、引張り応力  $\Delta\sigma$  は  $\Delta\sigma = F/A$  から得ることができた。バビネット (Babinet) 補償器を用いて、テープの厚さ d を通しての光学的行路差 T を白色光で決定した。次いで比行路差  $\Delta n$  を  $\Delta n = T/d$  から計算した。関係式  $\Delta n = C \times \Delta\sigma$  に基づいて、単位  $1/\text{Pa}$  のレオ光学定数 C を、ポイント対 ( $\Delta\sigma$ ,  $\Delta n$ ) の線形回帰により計算した。  $1.0 \times 10^{-11} (1/\text{Pa})$  より小さい値のレオ光学定数は最早や上述した方法を用いて正確に測定できなかった。

【0060】次の値を測定した：

13

実施例	レオ光学定数 (1/Pa)
1	160 * 10 <sup>-11</sup>
2	42 * 10 <sup>-11</sup>
3	19 * 10 <sup>-11</sup>
4	(-10 ~ +10) * 10 <sup>-11</sup>

【0061】

【表2】

14

対照実施例	レオ光学定数 (1/Pa)
5	140 * 10 <sup>-11</sup>
6	46 * 10 <sup>-11</sup>
7	(-10 ~ +10) * 10 <sup>-11</sup>

実施例8~10

10

表 2

実施例	フルオレノン ビス フェノール (g)	ビス フェノール TMC (g)	モル比 (モル/モル)	塩化 メチレン (g)	水 (g)
8	21.9	58.2	25:75	1646	1646
9	56.9	27.2	65:35	1728	1728
10	61.3	23.3	70:30	1786	1786

【0062】ビスフェノールTMCの略号は1, 1-ビス- (4-ヒドロキシフェニル) -3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサンを示す。

【0063】コポリカーボネートは実施例1~4において記述した方法で製造した。

【0064】上述の方法による複屈折率の決定はレオ光学定数に対して次の値を明らかにした。

【0065】

実施例	レオ光学定数 (1/Pa)
8	155 * 10 <sup>-11</sup>
9	(-10 ~ +10) * 10 <sup>-11</sup>
10	-22 * 10 <sup>-11</sup>

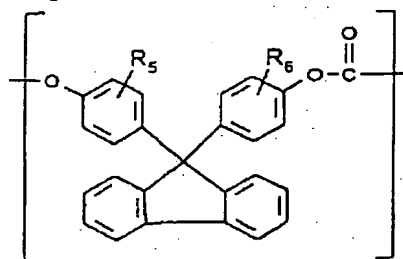
本発明の特徴と態様は以下の通りである：

1. 光学製品の製造に際して、ポリカーボネート中の2官能性カーボネート構造単位の全モル量に対して式

(I)

【0066】

【化18】



(I)

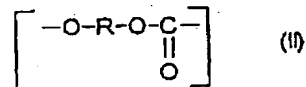
【0067】【式中、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>は同一でも異なってもよく且つH又はC<sub>1</sub>~C<sub>11</sub>アルキルである】の2官能性カーボネート構造単位を20~90モル%の量で含有

するポリカーボネートを使用する方法。

【0068】2. ポリカーボネートが式 (II)

【0069】

【化19】



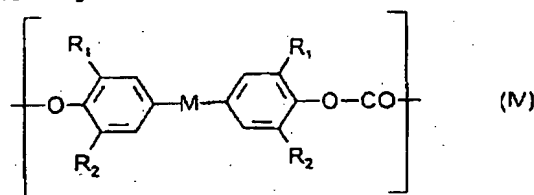
(II)

【0070】【式中、-O-R-O-はいずれか他の所望のジフェノレート残基であり、但し-R-は炭素数6~30の芳香族残基であって、1つ又はそれ以上の芳香族環を含有してよく、置換されていてよく、且つ脂肪族残基、脂環族残基又はヘテロ原子を架橋員として含有していてもよい】の他の2官能性カーボネート構造単位を80~10モル%の補完的な量で含有する上記1の使用法。

【0071】3. ポリカーボネートが式 (IV)

【0072】

【化20】



(IV)

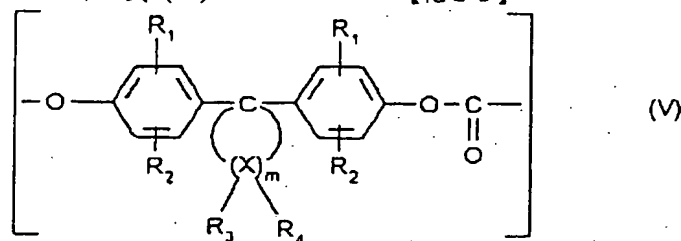
【0073】【式中、MはC<sub>1</sub>~C<sub>8</sub>アルキレン、C<sub>1</sub>~C<sub>8</sub>アルキリデン、C<sub>1</sub>~C<sub>11</sub>シクロアルキリデン、-S-及び単結合であり、またR<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は同一でも異なってもよく且つCH<sub>3</sub>、Cl、Br又はHである】の構造単位を、他のカーボネート構造単位として含有する

上記2の使用法。

【0074】4. ポリカーボネートが式(V)

【0075】

【化21】



【0076】【式中、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は同一でも異なってもよく且つCH<sub>3</sub>、Cl、Br、又はHであり、mは4又は5であり、そしてR<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は各Xに対して独立に且つ相互にも独立にH又はCH<sub>3</sub>であり、またXは炭素原子である】の構造単位を、他のカーボネート構造単位として含有する上記2の使用法。

【0077】5. 上記1の式(I)の2官能性カーボネート構造単位を、ポリカーボネート中の2官能性カーボ

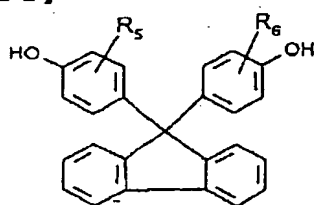
ネート、 $\bar{M}_w$  (予じめ補正後のゲルクロマトグラフィーによって測定した重量平均分子

【0079】子量) が少くとも9000の熱可塑性芳香族ポリカーボネート。

【0080】6. 下記ジフェノール(Ia)及び(Va)の100モル%に基づいて、20~90モル%の量のジフェノール(Ia)

【0081】

【化22】

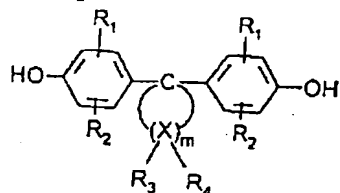


(Ia)

【0082】【式中、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>は同一でも異なってもよく且つH又はC<sub>1</sub>~C<sub>11</sub>アルキルである】を、80~10モル%の量のジフェノール(Va)

【0083】

【化23】



(Va)

(I1)の他の構造単位で代替されていてもよい $\bar{M}_w$  (予じめ補正後のゲルクロ

マトグラフィーによって測定した重量平均分子量) が少くとも9000のポリカーボネートを製造するに際して、下記ジフェノール(Ia)及び(Va)の100モル%に基づいて、20~90モル%の量のジフェノール(Ia)

【0088】

【化24】

ネート構造単位の全モル量に対して20~90モル%の量で、及び上記4の式(V)の2官能性カーボネート構造単位を、ポリカーボネート中の2官能性カーボネート構造単位の全モル量に対して80~10モル%の量で、含有する、但し構造単位(I)及び(V)の合計が各場合に100モル%であ

【0078】

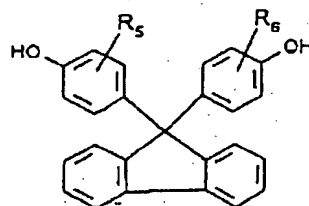
【外5】

【0084】【式中、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は同一でも異なってもよく且つCH<sub>3</sub>、Cl、Br、又はHであり、mは4又は5であり、そしてR<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は各Xに対して独立に且つ相互にも独立にH又はCH<sub>3</sub>であり、またXは炭素原子である】と一緒に、公知の方法に従い、延鎖停止剤及び随時分岐剤の存在下に、ホスゲンと又はジフェニルカーボネートと反応させる上記5のポリカーボネートの製造法。

【0085】7. 上記1の式(I)の2官能性カーボネート構造単位を、ポリカーボネート中の2官能性カーボネート構造単位の全モル量に対して20~90モル%の量で、及び上記4の式(V)の2官能性カーボネート構造単位の全モル量に対して80~10モル%の量で、含有する、但し構造単位(V)の特定のモル%の2/3までが上記2の一般式

【0086】

【外6】



(Ia)

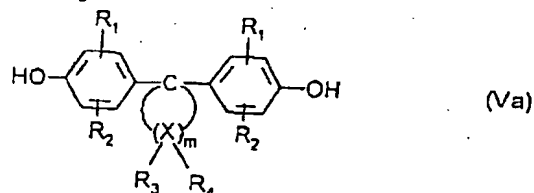
50 【0089】【式中、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>は同一でも異なってもよく且つCH<sub>3</sub>、Cl、Br、又はHであり、mは4又は5であり、そしてR<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は各Xに対して独立に且つ相互にも独立にH又はCH<sub>3</sub>であり、またXは炭素原子である】と一緒に、公知の方法に従い、延鎖停止剤及び随時分岐剤の存在下に、ホスゲンと又はジフェニルカーボネートと反応させる上記5のポリカーボネートの製造法。

17

もよく且つ H 又は  $C_1 \sim C_{11}$  アルキルである] を、80  
 ~10 モル%の量のジフェノール (Va)

【0090】

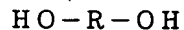
【化25】



【0091】【式中、 $R_1$  及び  $R_2$  は同一でも異なってもよく且つ  $CH_3$ 、 $Cl$ 、 $Br$ 、又は  $H$  であり、 $m$  は 4  
 又は 5 であり、そして  $R_3$  及び  $R_4$  は各  $X$  に対して独立

18

に且つ相互にも独立に  $H$  又は  $CH_3$  であり、また  $X$  は炭  
 素原子である] と一緒に、公知の方法に従い、延鎖停止  
 剤及び随時分岐剤の存在下に、ホスゲンと又はジフェニ  
 ルカーボネートと反応させる、但しジフェノール (V  
 a) の特定のモル%の 2/3 までが一般構造式 (I I  
 a)



【式中、 $-R-$  は炭素数 6 ~ 30 の芳香族残基である】  
 の他のジフェノールで代替されていてもよい、該ポリカ  
 ーボネートの製造法。

10

【0092】8. 上記 7 に従って製造されるコポリカー  
 ボネート。

フロントページの続き

- (72)発明者 ラルフ・バクル  
 ドイツ 5 0 2 5 9 ブルハイム・マルティン  
 シュトラーセ 2 4
- (72)発明者 ユルゲン・キルシュ  
 ドイツ 5 1 3 7 5 レーフェルクーゼン・フ  
 エルクリンガーシュトラーセ 2 0
- (72)発明者 ハルトムート・レバー  
 ドイツ 4 7 8 0 2 クレーフェルト・ベンガ  
 ーブファート 1 2 ツエー